(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro





(43) Internationales Veröffentlichungsdatum 26. Februar 2004 (26.02.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer WO 2004/017063 A3

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: 27/00

_

G01N 29/02,

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/DE2003/002226

(22) Internationales Anmeldedatum:

3. Juli 2003 (03.07.2003)

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

102 32 940.0

19. Juli 2002 (19.07.2002) DE

103 08 975.6

28. Februar 2003 (28.02.2003) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Wittelsbacherplatz 2, 80333 München (DE).

(72) Erfinder; und

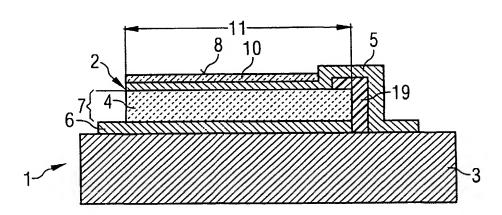
(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): GABL, Reinhard [AT/DE]; Adlzreiterstrasse 25, 80337 München (DE). WERSING, Wolfram [DE/DE]; Wagnerfeldweg 10, 83346 Bergen (DE). FEUCHT, Hans-Dieter [DE/DE]; Eschenweg 7, 71272 Renningen (DE). ZEININGER, Heinrich [DE/DE]; Tannenstrasse 6, 90587 Obermichelbach (DE).

(74) Gemeinsamer Vertreter: SIEMENS AKTIENGE-SELLSCHAFT; Postfach 22 16 34, 80506 München (DE).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: DEVICE AND METHOD FOR DETECTING A SUBSTANCE WITH THE AID OF A HIGH FREQUENCY PIEZO-ACOUSTIC THIN FILM RESONATOR

(54) Bezeichnung: VORRICHTUNG UND VERFAHREN ZUR DETEKTION EINER SUBSTANZ MITHILFE EINES HOCH-FREQUENTEN PIEZOAKUSTISCHEN DÜNNFILMRESONATORS



(57) Abstract: The invention relates to a device (1) for detecting at least one substance of a fluid (9). The device comprises at least one piezo-acoustic resonator (2) with at least one piezo layer (4), an electrode (5) arranged on the piezo-electric layer, at least one other electrode (6) arranged on the piezo-electric layer and a surface section (8) used for sorption of the substance of the fluid. The piezo-electric layer, the electrodes and the surface section are disposed in such a way that electric control of the electrodes leads to an oscillation (51,52) of the resonator at a resonance frequency which depends upon the amount of the substance which is sorbed on the surface section. The device is characterized in that the thickness (7) of the piezo-electric layer is in the region of 0.5 ?m to 20 ?m and the resonance frequency of the oscillation ranges from 500 MHz to 2 GHz. The device is a mass sensor with a piezo-acoustic high-frequency thin film resonator. The device is characterized by high mass sensitivity in the region of a few HzCEpg-1Ccm² and small lateral expansion. The device is used as a bio sensor or gas sensor.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft eine Vorrichtung (1) zur Detektion mindestens einer Substanz eines Fluids (9). Die Vorrichtung weist mindestens einen piezoakustischen Resonator (2) mit mindestens einer piezoelektrischen Schicht (4), einer an der piezoelektrischen Schicht angeordneten Elektrode (5), mindestens einer an der piezoelektrischen Schicht angeordneten

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]



WO 2004/017063 A3



- (81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL,

PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der f\(\text{iir}\) \text{ \text{Anderungen der Anspr\(\text{uch}\)} che geltenden
 \text{Frist; Ver\(\text{off}\) fentlichung wird wiederholt, falls \(\text{\text{Anderungen}}\)
 eintreffen
- (88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts: 13. Mai 2004

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

weiteren Elektrode (6) und einem Oberflächenabschnitt (8) zur Sorption der Substanz des Fluids auf, wobei die piezoelektrische Schicht, die Elektroden und der Oberflächenabschnitt derart aneinander angeordnet sind, dass eine elektrische Ansteuerung der Elektroden zu einer Schwingung (51, 52) des Resonators mit einer Resonanzfrequenz führt und die Resonanzfrequenz abhängig ist von einer am Oberflächenabschnitt sorbierten Menge der Substanz. Die Vorrichtung ist dadurch gekennzeichnet, dass eine Schichtdicke (7) der piezoelektrischen Schicht aus dem Bereich von einschliesslich 0,5 µm bis einschliesslich 20 µm und die Resonanzfrequenz der Schwingung aus dem Bereich von einschliesslich 500 MHz bis einschliesslich 2 GHz ausgewählt ist. Die Vorrichtung ist ein Massensensor mit einem piezoakustischen Hochfrequenz-Dünnfilmresonator. Die Vorrichtung zeichnet sich durch eine hohe Massensensitivität im Bereich von wenigen Hz×pg⁻¹×cm² aus und eine kleine laterale Ausdehnung. Die Vorrichtung wird als Biooder als Gassensor eingesetzt.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT



A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER TO THE PROPERTY OF SUBJECT MATTER TO T G01N27/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 GO1N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, BIOSIS, COMPENDEX, EMBASE, INSPEC, PAJ, WPI Data

C. DOCUM	ENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of	Relevant to claim No.		
X	US 5 932 953 A (DREES DENNIS 1 3 August 1999 (1999-08-03)	M ET AL)	1-6,10, 13,15, 17-22	
Y	abstract; figures 1A,1B,5A,5B		8,9,22, 23	
	column 1, line 6 - line 60 column 3, line 33 - line 43 column 6, line 23 - line 65 column 7, line 45 - column 8,	line 48		
Α	cordinary, Time 43 Cordinary,	Time 40	7,11-14, 16	
X	R.M. WHITE: "Surface acoustic sensors" ULTRASONICS SYMPOSIUM 1985, 19 490-494, XP001155517		1,4,5, 18-21	
Α	the whole document		2,3,6,7	
		-/		
X Furt	her documents are listed in the continuation of box C.	X Patent family members are lis	sted in annex.	
"A" docum consider co	ent which may throw doubts on priority claim(s) or is cited to establish the publication date of another in or other special reason (as specified) ent referring to an oral disclosure, use, exhibition or means	"T" later document published after the or priority date and not in conflict cited to understand the principle of invention. "X" document of particular relevance; if cannot be considered novel or cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document of particular relevance; if cannot be considered to involve a document is combined with one cannot be considered to involve a document is combined with one cannot be considered to involve a document is combined with one cannot be considered to involve a document and combination being of in the art.	with the application but or theory underlying the the claimed invention nnot be considered to e document is taken alone the claimed invention the riventive step when the or more other such docu-	
"P" docum	ent published prior to the international filing date but han the priority date claimed	in the art. "&" document member of the same pa		

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (July 1992)

Name and mailing address of the ISA

6 February 2004

Date of the actual completion of the international search

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31–70) 340–2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31–70) 340–3016

Date of mailing of the international search report

Uttenthaler, E

Authorized officer

0 9. 03. 04

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

i. ationa	l Application No
PE	03/02226

		E 03/02226
	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	I Palausa Anglalan Na
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 1 143 241 A (INTERUNIVERSITAIRE MICROELEKTR) 10 October 2001 (2001-10-10) abstract; figures 1,3 column 1, line 9 - column 8, line 48	1-7,13, 14,18-22
Υ	US 5 075 641 A (WEBER ROBERT J ET AL) 24 December 1991 (1991-12-24) abstract; figures 1,2 column 3, line 52 - column 5, line 50	8,9
Α	FERRARI V ET AL: "Multisensor array of mass microbalances for chemical detection based on resonant piezo-layers of screen-printed PZT" SENSORS AND ACTUATORS B, ELSEVIER SEQUOIA S.A., LAUSANNE, CH, vol. 68, no. 1-3, 25 August 2000 (2000-08-25), pages 81-87, XP004216596 ISSN: 0925-4005 cited in the application the whole document	1,18-21
Υ	I. WILLNER, E. KATZ: "Redoxproteinschichten auf leitenden Trägern - Systeme für bioelektronische Anwendungen" ANGEW. CHEM., vol. 112, 2000, pages 1230-1269, XP002269190	22,23
Α	cited in the application the whole document	7,13,14, 19-21
Α.	LIANG HONGWEI ET AL: "Material parameter characterization of multilayer LTCC and implementation of high Q resonators" IEEE MTT S INT MICROWAVE SYMP DIG; IEEE MTT-S INTERNATIONAL MICROWAVE SYMPOSIUM DIGEST 1999 IEEE, PISCATAWAY, NJ, USA, vol. 4, 1999, pages 1901-1904, XP0010343609 the whole document	11,12
	·	

Box I	Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)
This inte	mational search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:
1.	Claims Nos.: because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2.	Claims Nos.: because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3.	Claims Nos.: because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).
Box II	Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)
This Inte	ernational Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:
A	See supplemental sheet s a result of the prior review under R. 40.2(e) PCT, art additional fees are to be refunded.
1. X	As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2.	As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3.	As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4.	No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:
Remar	k on Protest The additional search fees were accompanied by the applicant's protest. No protest accompanied the payment of additional search fees.

The International Searching Authority has determined that this international application contains multiple (groups of) inventions, namely

1. Claims 1 (in part), 2-10, 13-23

high-frequency piezo acoustic thin-film resonator designed to make possible a high mass sensitivity to the chemical substance to be detected.

2. Claims 1 (in part), 11-12

high-frequency piezo acoustic thin-film resonator with a device for electrical contacting of the resonator and external evaluation equipment consisting of an FR4 and/or LTCC high-frequency substrate.

Form PCT/ISA/210

INTERNATIONAL SEARCH REPURT

tion on patent family members

	Inational	Application No
	P E.	03/02226
_		- 1

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
US 5932953	A	03-08-1999	AU BR EP WO	8176898 A 9810479 A 1018173 A1 9900855 A1	19-01-1999 12-09-2000 12-07-2000 07-01-1999
EP 1143241	Α	10-10-2001	EP US	1143241 A1 2001054305 A1	10-10-2001 27-12-2001
US 5075641	A	24-12-1991	CA DE DE EP JP WO	2097717 A1 69126623 D1 69126623 T2 0560925 A1 6503693 T 9210875 A1	05-06-1992 24-07-1997 18-12-1997 22-09-1993 21-04-1994 25-06-1992

INTERNATIONAL RECHERCHENBERICHT

ationales Aktenzeichen 03/02226

a. Klassifizierung des anmeldungsgegenstandes IPK 7 G01N29/02 G01N27/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

GOIN HO3B IPK 7

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, BIOSIS, COMPENDEX, EMBASE, INSPEC, PAJ, WPI Data

C. ALS WE	SENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, sowelt erforderlich unter Angabe	e der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Х	US 5 932 953 A (DREES DENNIS M E 3. August 1999 (1999-08-03)	T AL)	1-6,10, 13,15, 17-22
Υ	Zusammenfassung; Abbildungen 1A,1	B,5A,5B	8,9,22, 23
,	Spalte 1, Zeile 6 - Zeile 60 Spalte 3, Zeile 33 - Zeile 43 Spalte 6, Zeile 23 - Zeile 65 Spalte 7, Zeile 45 - Spalte 8, Ze	oile 48	
A			7,11-14, 16
х	R.M. WHITE: "Surface acoustic was sensors" ULTRASONICS SYMPOSIUM 1985, 1985,		1,4,5, 18-21
A	490-494, XP001155517 das ganze Dokument		2,3,6,7
		-/	
	tere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu nehmen	X Siehe Anhang Patentfamilie	
"A" Veröffe aber n	e Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : intlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, licht als besonders bedeutsam anzusehen ist Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen	"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem oder dem Prioritätsdatum veröffentlich Anmeldung nicht kollidiert, sondern nu Erfindung zugrundeliegenden Prinzips Theorie angegeben ist	t worden list und mit der ir zum Verständnis des der
Anme	ildedatum veröffentlicht worden ist intlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er- nen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer en im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden	"X" Veröffentlichung von besonderer Bedel kann allein aufgrund dieser Veröffentli erfinderischer Tätigkeit beruhend betre	chung inicht als neu oder auf achtet werden
soll of ausge "O" Veröffe eine E	der die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie	"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedei kann nicht als auf erfinderischer Tätigl werden, wenn die Veröffentlichung mit Veröffentlichungen dieser Kategorie in diese Verbindung für einen Fachmann "&" Veröffentlichung, die Mitglied derselber	keit beruhend betrachtet t einer oder mehreren anderen I Verbindung gebracht wird und I nahellegend ist
	Abschlusses der internationalen Recherche	Absendedatum des internationalen Re	cherchenberichts .

Formblatt PCT/ISA/210 (Blatt 2) (Juli 1992)

6. Februar 2004

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo ni, Fax: (+31-70) 340-3016

0 9. 03. 04

Bevollmächtigter Bediensteter

Uttenthaler, E

	ung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN	· Is a described
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht komme	nden Teile Betr. Anspruch Nr.
A	EP 1 143 241 A (INTERUNIVERSITAIRE MICROELEKTR) 10. Oktober 2001 (2001-10-10) Zusammenfassung; Abbildungen 1,3 Spalte 1, Zeile 9 - Spalte 8, Zeile 48	1-7,13, 14,18-22
Υ .	US 5 075 641 A (WEBER ROBERT J ET AL) 24. Dezember 1991 (1991-12-24) Zusammenfassung; Abbildungen 1,2 Spalte 3, Zeile 52 - Spalte 5, Zeile 50	8,9
A	FERRARI V ET AL: "Multisensor array of mass microbalances for chemical detection based on resonant piezo-layers of screen-printed PZT" SENSORS AND ACTUATORS B, ELSEVIER SEQUOIA S.A., LAUSANNE, CH, Bd. 68, Nr. 1-3, 25. August 2000 (2000-08-25), Seiten 81-87, XP004216596 ISSN: 0925-4005 in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument	1,18-21
Υ	I. WILLNER, E. KATZ: "Redoxproteinschichten auf leitenden Trägern - Systeme für bioelektronische Anwendungen" ANGEW. CHEM., Bd. 112, 2000, Seiten 1230-1269, XP002269190 in der Anmeldung erwähnt	22,23
А	das ganze Dokument	7,13,14, 19-21
A	LIANG HONGWEI ET AL: "Material parameter characterization of multilayer LTCC and implementation of high Q resonators" IEEE MTT S INT MICROWAVE SYMP DIG; IEEE MTT-S INTERNATIONAL MICROWAVE SYMPOSIUM DIGEST 1999 IEEE, PISCATAWAY, NJ, USA, Bd. 4, 1999, Seiten 1901-1904, XP0010343609 das ganze Dokument	11,12

Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen naben (Fonsetzung von Funkt 2 auf Blatt 1)
Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:
1. Ansprüche Nr. weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich
2. Ansprüche Nr. weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
3. Ansprüche Nr. weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.
Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)
Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:
siehe Zusatzblatt As a result of the prior review under R. 40.2(e) PCT, part additional fees are to be refunded.
1. Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.
2. Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchengebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
3. Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.
Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:
Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs X Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt. Die Zahlung zusätzlicher Recherchengebühren erfolgte ohne Widerspruch.

PCT/ISA/ 210

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, dass diese internationale Anmeldung mehrere (Gruppen von) Erfindungen enthält, nämlich:

1. Ansprüche: 1 (teilweise), 2-10, 13-23

Hochfrequenter piezoakustischer Dünnfilmresonator derart ausgestaltet, dass eine hohe Massensensitivität gegenüber der zur detektierenden chemischen Substanz ermöglicht wird.

2. Ansprüche: 1 (teilweise),11-12

Hochfrequenter piezoakustischer Dünnfilmresonator mit einer Einrichtung zur elektrischen Kontaktierung des Resonators und externer Auswerteeinrichtung bestehend aus einem FR4-und/oder LTCC-Hochfrequenzsubstrat.

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

I ationales Aktenzeichen	
PO E. 03/02226	

Im Recherchenberich angeführtes Patentdokur		Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 5932953	A	03-08-1999	AU BR EP WO	8176898 A 9810479 A 1018173 A1 9900855 A1	19-01-1999 12-09-2000 12-07-2000 07-01-1999
EP 1143241	А	10-10-2001	EP US	1143241 A1 2001054305 A1	10-10-2001 27-12-2001
US 5075641	A	24-12-1991	CA DE DE EP JP WO	2097717 A1 69126623 D1 69126623 T2 0560925 A1 6503693 T 9210875 A1	05-06-1992 24-07-1997 18-12-1997 22-09-1993 21-04-1994 25-06-1992